

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平9-510784

(43) 公表日 平成9年(1997)10月28日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I
G 2 1 F 9/06	5 1 1	9216-2G	G 2 1 F 9/06
C 0 2 F 1/32		9630-4D	C 0 2 F 1/32
		9630-4D	1/58
		9630-4D	1/64
		9630-4D	1/72
			A
			Z
			Z

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 15 頁) 最終頁に続く

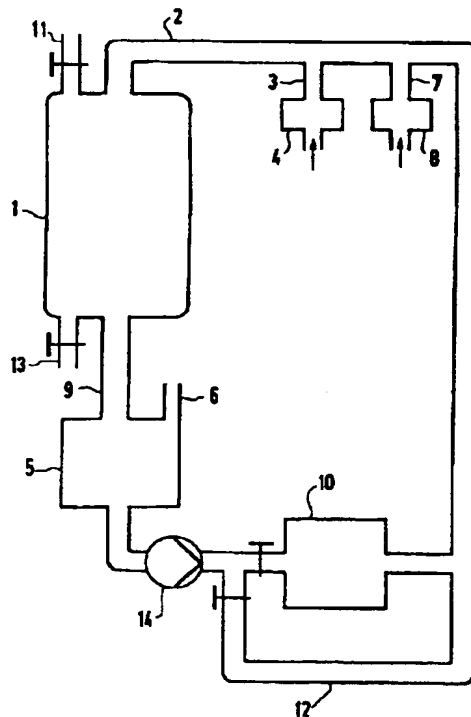
(21) 出願番号 特願平7-524904
 (86) (22) 出願日 平成7年(1995)3月28日
 (85) 翻訳文提出日 平成8年(1996)9月24日
 (86) 国際出願番号 PCT/DE95/00417
 (87) 国際公開番号 WO95/26555
 (87) 国際公開日 平成7年(1995)10月5日
 (31) 優先権主張番号 P4410747.1
 (32) 優先日 1994年3月28日
 (33) 優先権主張国 ドイツ (DE)
 (81) 指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), CA, FI, HU, JP, SK, US

(71) 出願人 シーメンス アクチエンゲゼルシャフト
 ドイツ連邦共和国 デー-80333 ミュン
 ヘン ウイツテルスバツヒアーブラツツ
 2
 (72) 発明者 ベルトルト、ホルスト-オットー
 ドイツ連邦共和国 デー-91336 ヘル
 ズバツハ フベルツスシユトラーセ 4
 (72) 発明者 ベーゲ、ディートマール
 ドイツ連邦共和国 デー-91056 エル
 ランゲン シユワルベンヴェーク 10
 (74) 代理人 弁理士 富村 潔

(54) 【発明の名称】 有機酸を含む溶液の廃棄処理方法及び装置

(57) 【要約】

本発明は有機酸及び鉄錯体を含み、特に放射線により汚染され部材の表面の除染の際に生じる水溶液を廃棄処理する方法及び装置に関する。溶液中の鉄錯体を紫外線で照射することにより還元することが行われる。その際溶解鉄塩及び二酸化炭素が形成される。更にこの溶解鉄塩及び有機酸を含む溶液に酸化剤を添加する。その際鉄塩及び有機酸を含む溶液に酸化剤を添加する。その際水が生じ、鉄錯体が新たに形成される。溶解鉄塩の一部はカチオン交換器により溶液から除去される。鉄錯体を含む溶液を新たに紫外線で照射するこの循環過程は全ての有機酸が使い尽くされるまで繰り返される。



【特許請求の範囲】

1. 有機酸及び鉄錯体を含む水溶液、特に放射線により汚染された部材の表面を
除染する際に生じる水溶液を廃棄処理する方法において、この溶液を紫外線で照
射し、それにより鉄錯体を還元し、溶解鉄塩及び二酸化炭素を形成し、溶解鉄塩
の一部をカチオン交換器により溶液から除去し、溶解鉄塩の他の一部、酸の一部
及び添加される酸化剤から水及び新たに鉄錯体を形成し、鉄錯体及び未だ分解さ
れていない有機酸を含む残留溶液を新たに紫外線で照射し、有機酸が存在しな
くなるまで循環過程を進めることを特徴とする有機酸及び鉄錯体を含む水溶液の廃
棄処理方法。
2. 酸の一部を鉄錯体に移行させるため溶液にイオン化鉄を混ぜ合わせることを
特徴とする請求項1記載の方法。
3. 酸の一部を一定の原子価のイオン化鉄により同じ原子価の鉄錯体に移行させ
ることを特徴とする請求項2記載の方法。
4. 酸の一部をイオン化された3価のイオン化鉄により鉄(III)錯体に移行
させることを特徴とする請求項3記載の方法。
5. 溶液中の鉄錯体からその原子価が鉄錯体の原子価よりも1だけ小さい溶解鉄
塩を形成することを特徴とする請求項1乃至4記載の方法。
6. 溶液中の鉄(III)錯体から2価の溶解鉄塩を形成し、次いで鉄(III)
錯体を新たに形成することを特徴とする請求項5記載の方法。
7. 酸化剤が過酸化水素又はオゾンであることを特徴とする請求項1乃至6の1
つに記載の方法。
8. 酸化剤の濃度が0.002モル/l～0.02モル/lであることを特徴と
する請求項1乃至7の1つに記載の方法。
9. 酸化剤の濃度が0.005モル/l～0.007モル/lであることを特徴
とする請求項8記載の方法。
10. 紫外線が250nm～350nmの波長を有することを特徴とする請求項
1乃至9の1つに記載の方法。
11. 有機酸及び鉄錯体を含み、特に放射線により汚染された部材の表面を除染

する際に生じる溶液のためのタンク（１）で水溶液を廃棄処理するための装置において、タンク（１）から環状導管（２）が出てこのタンクに戻り、環状導管（２）が紫外線照射コンポーネント（５）を含んでおり、配量装置（８）を含んでいる酸化剤用導管（７）及びカチオン交換器（１０）が環状導管（２）に接続されていることを特徴とする水溶液の廃棄処理装置。

１２．配量装置（４）を含んでいる鉄イオンを含む溶液のための導管（３）が環状導管（２）に接続されていることを特徴とする請求項１記載の装置。

【発明の詳細な説明】

有機酸を含む溶液の廃棄処理方法及び装置

本発明は有機酸及び鉄錯体を含む水溶液、特に放射線により汚染された部材の表面を除染する際に生じる水溶液を廃棄処理する方法に関する。また本発明は有機酸及び鉄錯体を含む溶液用タンクで水溶液、特に放射線により汚染された部材の表面を除染する際に生じる水溶液を廃棄処理する装置に関する。

有機物質を廃棄処理する方法及び装置はドイツ連邦共和国特許出願公開第4126971号明細書から公知である。この方法及び装置では有機酸が対象となっており、この有機酸は放射線により汚染された部材の表面を除染するために使用される。

この種の除染後には化学的に変化しない酸の他に除染の際に形成された化学物質及び部材の表面から除去された放射性物質を含む溶液が残留する。このような溶液は固化され、最終的に容器に貯蔵されなければならない。

従ってできるだけ少量の最終貯蔵量で済まされるように固化の前に溶液の容量をできるだけ少なくするように努められている。

触媒と接触している間にこの溶液に過酸化水素を添加することは公知である。その際主な分解生成物として二酸化炭素と水が生じる。従ってこの溶液の濃度は低下し、従って蒸発工程後比較的僅かな容量が残り、これを固化して最終貯蔵に供する必要がある。

この公知方法及び装置は有機物質の廃棄処理に触媒を必要とする。この種の触媒はこの有機物質と接触させなければならない。それには廃棄処理すべき溶液中に固体の触媒剤を浮遊保持させなければならない。またこの方法の一変形では触媒の保持にかなりの費用を必要とする。

除染中金属がアニオン及びカチオンの形で沈殿する。これらの金属イオンの除去にはアニオン及びカチオン交換器を使用するのが一般的である。その際アニオン交換器でアニオン金属錯体及び除染化学物質も除去される。そのためには大きなアニオン交換器を必要とする。このことは廃棄処理されなければならない大量

のイオン交換樹脂を生じることになる。

残留溶液は通常蒸発され、こうして生じた濃縮液が最終的に貯蔵される。除染された系は最終的に更に洗浄され、洗浄水が蒸発濃縮される。従って極めて大量の溶液又は水量が処理されなければならない。

本発明の課題は、経費を要する触媒を使用せずに有機酸を含む水溶液を廃棄処理する方法を提供することにある。またこのような水溶液を廃棄処理するのに適した装置を提供することにある。

特に除染後イオン交換樹脂がごく僅かであり、また廃棄処理されなければならない大量の溶液を生じてはならない。

最初に述べた課題は本発明により、溶液を紫外線で照射し、それにより鉄錯体を還元し、溶解鉄塩及び二酸化炭素を形成し、この溶解鉄塩の一部をカチオン交換器により溶液から除去し、溶解鉄塩の他の一部、酸の一部及び添加された酸化剤から水及び新たに鉄錯体を形成し、鉄錯体及び未だ分解されていない有機酸を含む溶液を新たに紫外線で照射し、有機酸が存在しなくなるまで循環過程を進めることにより解決される。

廃棄処理すべき水溶液中に含まれる鉄錯体は例えば除染の際にこの溶液に入っていく。この種の溶液はまた、有機酸を含む水溶液の廃棄処理のために鉄錯体の代わりに貢献するクロム錯体及びニッケル錯体を含んでいてもよい。

本発明方法により溶液中にある有機酸は触媒を必要とすることなく十分に残渣なく二酸化炭素及び水に置換されるという利点が達成される。この有機酸の廃棄処理方法は既に除染中に導入可能である。この方法は経費を要する設備を必要としない。本発明方法は例えば除染されるタンク内で直接実施可能である。二酸化炭素は放射性物質を含んでいないので放出可能である。

新たに形成される鉄錯体は本発明方法では有利なことに再利用される。そのため循環過程が行われる。

循環過程によりアニオンの鉄錯体は有利には鉄のカチオンに移行される。従ってカチオン交換体のみを使用し、アニオン交換器を使用する必要はない。

廃棄処理すべきイオン交換樹脂の量は有利には除染すべき系の実際のカチオンの放出にのみ向けられる。樹脂量は公知方法による除染処理の際に生じる樹脂量

に比べて約20倍少なくなる。これは本発明方法を負荷された除染溶液の廃棄処理に使用する場合に有効である。樹脂量が少なければ最終貯蔵量も小さくて済む。

本発明方法では溶液は有利には、除染された系を例えば冷却剤としてその後の操作に再利用可能である程度に浄化される。

溶液を蒸発処理で経費をかけて廃棄処理することは行われない。また除染された系は洗浄を行う必要はない。洗浄を行うと大部分が後に蒸発される水量となるであろう。

廃棄処理すべき溶液は通常既に鉄錯体を含んでいる。これは廃棄処理すべき有機酸の一部及び溶液中にいずれにしても存在する鉄イオンから形成される。これらの鉄イオンは例えば汚染過程に又は既にそれ以前に除染すべきタンク内に入れられていてもよい。

しかし鉄イオンが溶液中に存在しない場合には、溶液に例えば酸の一部を鉄錯体に移行させるためにイオン化鉄（鉄イオン）を混入してもよい。それには例えば鉄塩を溶液に入れ、鉄塩はそこでイオン化され、それによりとりわけ鉄イオンが形成される。鉄イオンの添加により、たとえ鉄イオンが溶液中に欠けていたとしても、酸の一部を鉄錯体に移行させるために十分な鉄イオンが用意されるという利点が達成される。

例えばイオン化鉄は一定の原子価を有し、酸の一部で同じ原子価を有する鉄錯体（同価の鉄錯体）を形成する。

例えばイオン化鉄が3価である場合、有機酸の一部で鉄（III）錯体が形成される。

紫外線の照射によりこの錯体は二酸化炭素の形成下に、溶解鉄塩（鉄の原子価は例えば錯体の鉄の原子価より1だけ小さい）に置換される。（この鉄塩は鉄錯体の原子価よりもその原子価が1だけ小さい）。この溶解鉄塩、酸の残分及び添加される酸化剤は鉄錯体を新たに形成する。更に水も形成される。

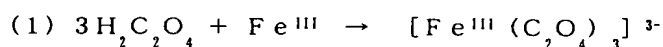
鉄（III）錯体は例えば2価の鉄を溶かした塩（2価の鉄塩）に置換される。この溶かされた2価の鉄塩、有機酸の残分及び添加される酸化剤は化学反応し、水及び新たに鉄（III）錯体を形成する。この鉄（III）錯体は予め存在

している鉄(III)錯体に相当する。こうして鉄(III)錯体が再生される。

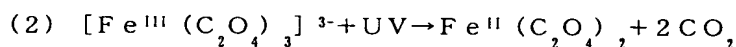
有機酸の残量の全てが例えば鉄塩の量が十分でなかったため鉄塩及び酸化剤と化学的に反応しなかった場合、再生された鉄錯体から紫外線の照射により新たに二酸化炭素及び必要とされる溶解鉄塩を形成可能である。この鉄塩は更に添加される酸化剤及びなお残留する有機酸と新たに鉄錯体及び水の形成下に反応する。全ての有機酸がカチオン交換器で除去される比較的僅かな量の鉄塩及び二酸化炭素と水に置換されるまで、循環過程が行われると有利である。二酸化炭素及び水は放出される。

相応する循環過程は他のイオン化された金属を使用する際にも実施可能である。

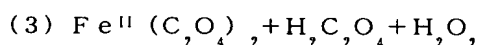
有機酸が例えばシュウ酸である場合以下の反応方程式が進行する。



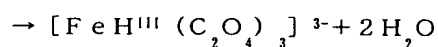
シュウ酸 + 3価の鉄 → 鉄(III)錯体



鉄(III)錯体 + UV → 2価の鉄塩 + CO₂



2価の鉄塩 + シュウ酸 + 過酸化水素



→ 鉄(III)錯体 + H₂O

反応方程式(3)で形成される鉄(III)錯体は新たに反応方程式(2)で使用される。両反応方程式(2)及び(3)はシュウ酸の全てが使い尽くされるまで交互に行われる。従ってCO₂及び水の他に2価の鉄塩が僅かに残る。

相応する循環過程は開始時にイオン化金属により形成可能の他の全ての金属錯体でも可能である。

循環過程を行うために特別なタンクは必要ではない。むしろ丁度その前に除染されたタンク内で実施することもできる。

二価の鉄塩に置換されない有機酸は循環過程により有利なことに経費を要する

廃棄処理を必要としない水と二酸化炭素に完全に置換される。

酸化剤は例えば過酸化水素又はオゾンであってもよく、これらは特に適しているものである。

酸化剤の濃度は例えば0.002モル/1～0.02モル/1、特に0.005モル/1～0.007モル/1であると有利である。過酸化水素の濃度が明らかに高い場合には過酸化水素の紫外線吸収により有機酸は僅かにしか置換されないであろう。

使用される紫外線の特に適した波長は250nm～350nmである。

2番目に設定された課題である有機酸及び鉄錯体を含む溶液、特に放射線により汚染された部材の表面を除染する際に生じる溶液のためのタンクで水溶液を廃棄処理するのに適した装置を提供する課題は本発明により、タンクから環状導管が出てこのタンクに接合しており、環状導管が紫外線照射コンポーネントを含んでおり、配量装置を含んでいる酸化剤用導管及びカチオン交換器が環状導管に組み込まれていることにより解決される。

紫外線照射コンポーネント内では溶液中に存在する鉄錯体が還元され、その結果溶解鉄塩及び二酸化炭素が形成が行われる。二酸化炭素は気体として排出管を介して放出される。配量装置を使用して引続き導管を介して適量の酸化剤が供給される。導管はタンクを介して又は直接紫外線照射コンポーネントと接続するか又は他の箇所環状導管に接合してもよい。こうして酸化剤はこの時点では溶解鉄塩と有機酸を含む溶液が存在する箇所に達することが保証される。

酸化剤の供給後水の他に鉄錯体が新たに形成される。この鉄錯体は予め既に存在していた鉄錯体に相当する。こうして循環過程の進行は保証される。更に鉄錯体は新たに紫外線で照射され、それにより還元される。再び溶解鉄塩及び二酸化炭素が形成され、この鉄塩から残りの酸及び酸化剤と共に新たに鉄錯体並びに水が形成される。この循環過程は全ての酸が使い尽くされるまで進行可能である。

タンク又は環状導管と鉄イオンを含む溶液用導管は配量装置を介して接続されてもよい。タンク内にある溶液に鉄イオンがそもそも含まれていない場合、この導管を介して鉄イオンを含む溶液が本方法の開始時に供給される。しかし大抵は

鉄イオンは含まれている。溶液中に鉄イオンが存在しなければ鉄イオン及び廃棄処理すべき酸の一部から形成される鉄錯体も存在しえないことになる。

好都合にも妨げとなるアニオンが存在しないので、カチオン交換器で残留溶液を例えば冷却剤として再利用できる程度に浄化してもよい。従って蒸発装置は必要ではなく、従って蒸発残渣も除去する必要はない。

環状導管内での化学循環過程は、通過の際に場合によって残っている有機酸の分量も置換されるまで行われる。これはカチオン交換器内に鉄錯体が保留されないため可能である。全ての酸が使い尽くされると鉄錯体はもはや形成されない。更に時には少量の鉄塩が溶液中に残留する。しかしこの鉄塩のカチオン分はカチオン交換器により溶液から除去される。同様に溶液中に除染処理のために存在しかなない放射性カチオンはカチオン交換器により除去される。残留溶液は更に処理される必要はなく、直ちに冷却剤として再利用可能である。

本発明による方法及び装置により、化学的循環過程中有機酸を経費を要する触媒法を使用せずに十分に二酸化炭素と水に置換できるという利点が達成される。更に除染後には残留物質を除去するためにアニオン交換器も蒸発器も必要ではない。

有機酸を含む水溶液の廃棄処理する装置を図面に基づき以下に詳述する。

図面は除染タンクであってもよい環状導管2の一部であるタンク1を示すものである。除染後タンク1内の溶液には廃棄処理しなければならない有機酸が残留している。しかしタンク1は有機酸を含む水溶液を廃棄処理のために満たされる独立したタンクであってもよい。タンク1は廃棄処理すべき溶液が注入される注入口11を有している。タンク1内の除染が行われる場合には、除染前にこの開口を介して除染用化学薬品がタンク1に達する。廃棄処理すべき溶液中に鉄錯体が含まれていない場合には、溶かした鉄塩の形で供給することのできる鉄イオン用の導管3が設けられている。この導管3は配量装置4を含んでおり、環状導管2に接合されている。導管3は直接タンク1に接続してもよい。イオン化鉄により溶液中の有機酸の一部が鉄錯体に移行される。

環状導管2の一部であるタンク1の排出管9には紫外線照射コンポーネント5

が接続されている。紫外線で照射されることによりそこで溶液中の鉄錯体が還元され、その結果溶解鉄塩及び二酸化炭素が形成される。二酸化炭素は紫外線照射コンポーネント5をそれと接続されている排出管6を介して出ていく。この二酸化炭素は汚染物質を含んでいないため放出可能である。

更に酸化剤は酸化剤用導管7を介して酸化剤は環状導管2に達し、この時点で導管には溶解鉄塩及び有機酸の残分がある。酸化剤の配量は導管7内にある配量

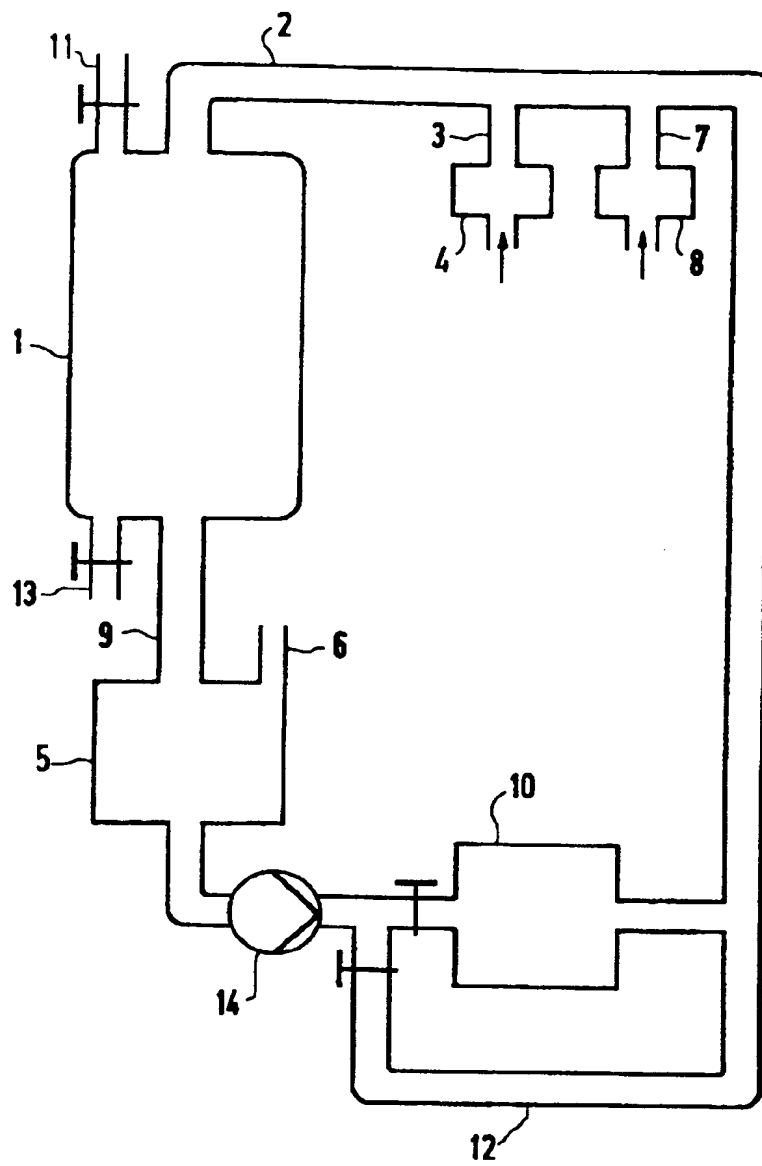
装置8により行われる。導管3及び／又は7はここには図示されていない紫外線照射コンポーネント5の手前の流れ方向の箇所又は直接紫外線照射コンポーネント5に接合される。溶解鉄塩、酸の一部及び酸化剤から水及び前述の鉄錯体に相当する鉄錯体が新たに形成される。この時点から循環過程が繰り返されてもよい。この鉄錯体は新たに紫外線により還元され、その際溶解鉄塩と二酸化炭素が形成される。それにより再び酸化剤が作用し、その結果酸化剤、鉄塩及び酸の別の一部から新たに鉄錯体と水が形成される。このような循環過程を何度も繰り返した後最終的に全ての酸が二酸化炭素、水及び少量の鉄塩に置換される。

廃棄処理すべき溶液が除染溶液であった場合残留溶液はなお除染により除去された放射性物質を含んでいる。この物質及び鉄塩のカチオン分は紫外線照射コンポーネント5に後置接続可能であるカチオン交換器10により溶液から除去される。アニオン交換機は必要ではない。それにも拘らず残留液体は極めて純粋であるので、冷却剤として例えば発電所で再利用可能である。カチオン交換器10は環状導管2内に配設されている。これはバイパス12を通して迂回可能であり、従って溶液の一部はカチオン交換器10を通らずに通過可能であり、それにより鉄塩が新たに鉄錯体を形成するのに必要な限り鉄塩はなくなる。しかし一般に通過の際カチオン交換器10により鉄塩の一部だけが溶液から除去される。

残留液体の除去には蒸発装置は必要ではない。イオン交換樹脂がごく僅かに存在するだけで、廃棄処理されなければならない蒸発残渣を生じないことは有利である。

図示されている装置を空にするため排出開口13が設けられている。環状導管2にはポンプ14が設けられてもよい。

【図1】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 Intern. Application No
 PCT/DE 95/00417

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 G21F9/06 C02F1/32		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC:		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 G21F C02F		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	NL,A,9 001 721 (ECO PURIFICATION SYSTEMS) 2 January 1991 see claims 1,2,10; figure & DATABASE WPI Week 9105 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 91-034595 see abstract --- -/--	1-7
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "I" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel (or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone) "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
8 August 1995		31.08.95
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 581 8 Patentlaan 2 NL - 2280 LV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016		Authorized officer Nicolas, H

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern. Application No.
PCT/DE 95/00417

C(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	<p>DATABASE INSPEC INSTITUTE OF ELECTRICAL ENGINEERS, STEVENAGE, GB Inspec No. an-4487274, Trans.Am. Nucl. Soc. (USA), 1993, WESTINGHOUSE HANFORD 'hanford site treated effluent disposal facility process flow sheet' see abstract & AMERICAN NUCLEAR SOCIETY, 20 June 1993 - 24 June 1993 SAN DIEGO, CA, USA,</p> <p>---</p>	1-7
Y	<p>DE,A,35 01 528 (FORSCHUNGSINSTITUT FUER EDEMETALLE UND METALLCHEMIE) 24 July 1986 see page 4, paragraph 1 - page 5; claims 1-4</p> <p>---</p>	1-7
Y	<p>EP,A,0 543 112 (DEGUSSA) 26 May 1993 see abstract; claims 1,6; examples 1-4</p> <p>---</p>	1-7
A	<p>DATABASE INSPEC INSTITUTE OF ELECTRICAL ENGINEERS, STEVENAGE, GB Inspec No. an 3876109 , , 1990 EVANS 'Treatment and disposal of steam generator and heat exchanger chemical cleaning wastes' see abstract & WASTE MANAGEMENT 90 : WORKING TOWARD A CLEANER ENVIRONMENT. , 25 February 1990 - 1 March 1990 TUCSON, AZ, USA,</p> <p>---</p>	1-7
A	<p>WO,A,92 03829 (ELECTRIC POWER RESEARCH) 5 March 1992 see abstract; claims 1,3,5; figure 1</p> <p>---</p>	1-5
A	<p>WO,A,91 13032 (SOLARCHEM) 5 September 1991 see the whole document</p> <p>-----</p>	1-5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No.

PCT/DE 95/00417

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
NL-A-9001721	02-01-91	NONE	
DE-A-3501528	24-07-86	NONE	
EP-A-543112	26-05-93	DE-A- 4138421	27-05-93
		AT-T- 123272	15-06-95
		DE-D- 59202400	06-07-95
		JP-A- 6285480	11-10-94
		US-A- 5348665	20-09-94
WO-A-9203829	05-03-92	NONE	
WO-A-9113032	05-09-91	US-A- 5043080	27-08-91
		AT-T- 107912	15-07-94
		AU-B- 650003	09-06-94
		AU-A- 7248991	18-09-91
		DE-D- 69102695	04-08-94
		EP-A- 0516671	09-12-92

フロントページの続き

(51) Int. Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	
C 0 2 F 1/78		9630-4D	C 0 2 F 1/78	
G 2 1 F 9/06	Z A B	9216-2G	G 2 1 F 9/06	Z A B
	5 5 1	9216-2G		5 5 1 A